

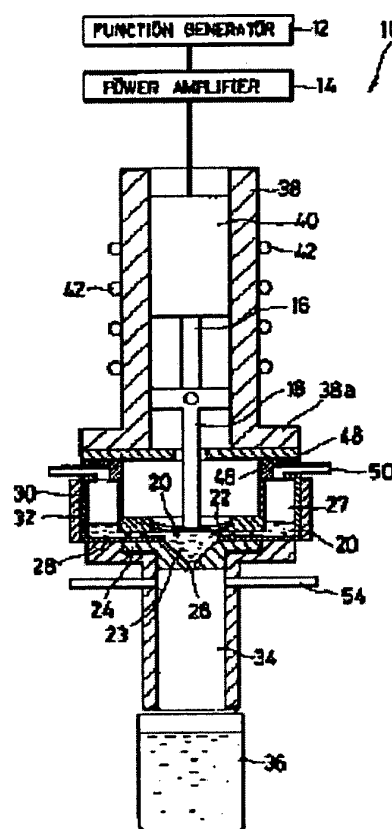
PROCESS AND APPARATUS FOR PRODUCTION OF SPHERICAL MONODISPERSE PARTICLE

Patent number: JP6184607
Publication date: 1994-07-05
Inventor: WATANABE RYUZO; others: 03
Applicant: RYUZO WATANABE; others: 02
Classification:
 - **International:** B22F9/08
 - **European:**
Application number: JP19910317096 19911129
Priority number(s):

Abstract of JP6184607

PURPOSE: To produce the monodisperse metallic particles of a nearly spherical shape by transmitting the pulse pressure by a rolling actuator to molten metal via a diaphragm and injecting the molten metal from an orifice by this pressure.

CONSTITUTION: The molten metal 20 is put into a molten metal chamber 23 and is heated by a heater 32, by which the metal is maintained in a molten state. Rectangular waves are generated by a function generator 12 and are amplified by an amplifier 14. These rectangular waves are impressed to the rolling actuator 16 and the diaphragm 22 in the upper part of the molten metal 20 is vibrated by the rectangular waves via a transmission rod 18. The vibrating force is applied by the diaphragm 22 to the molten metal 20 and the molten metal 20 is ejected in a liquid drop form as the monodisperse particles from the orifice 26 provided in the bottom of the molten metal chamber 23. While the molten metal is adequately cooled by an inert gas in a lower chamber 34, the molten metal spheroidizes nearly to spheres; thereafter, the spherical particles fall into a water tank 36 where the particles solidify as spherical metallic particles. These particles are recovered.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-184607

(43)公開日 平成6年(1994)7月5日

(51)Int.Cl.⁸

B 2 2 F 9/08

識別記号

庁内整理番号

C

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数4(全 9 頁)

(21)出願番号 特願平3-317096

(22)出願日 平成3年(1991)11月29日

特許法第30条第1項適用申請有り 平成3年5月29日
 社団法人粉体粉末冶金協会発行の「平成3年度春季大会
 第67回講演大会講演概要集」に発表

(71)出願人 591267693

渡辺 龍三

宮城県仙台市青葉区台原3丁目15-12

(71)出願人 591081057

川崎 亮

宮城県仙台市青葉区昭和町5丁目51番701号

(71)出願人 591267707

株式会社真壁技研

宮城県仙台市宮城野区苦竹3丁目1番25号

(72)発明者 渡辺 龍三

宮城県仙台市青葉区台原3丁目15-12

(74)代理人 弁理士 渡辺 望稔 (外1名)

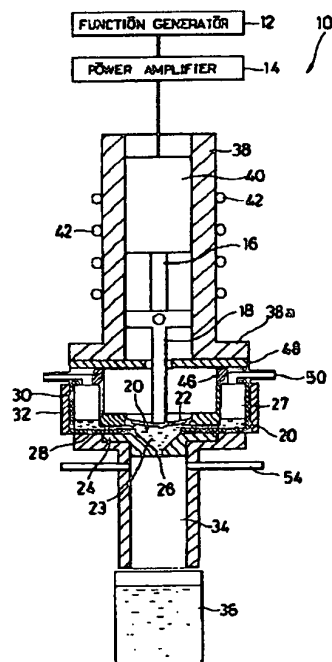
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 球形単分散粒子の製造方法および装置

(57)【要約】

【目的】個々の粒子の粒度をより幅広く人為的に制御することができ、安定して粒度のそろったより真球に近い球形の単分散粒子を製造することができる球形単分散粒子製造方法および装置の提供。

【構成】圧電アクチュエータにパルス圧力を発生させ、このパルス圧力を伝達ロッドを介してダイアフラムに伝達し、このダイアフラムに密着する前記熔融金属に伝達して、前記ダイアフラムの熔融金属側への臨界変位以上の変位によって前記熔融金属を貯留する容器に設けられたオリフィスから前記熔融金属を不活性ガス流中に1個ずつ単分散粒子として噴射して球状化し、冷却用水中で冷却した後、球形単分散粒子を回収する単分散粒子の製造方法および装置。



【特許請求の範囲】

【請求項1】溶融金属から球形単分散粒子を製造するに際し、

圧電アクチュエータにパルス圧力を発生させ、このパルス圧力を伝達ロッドを介してダイアフラムに伝達し、このダイアフラムに密着する前記溶融金属に伝達して、前記ダイアフラムの溶融金属側への臨界変位以上の変位によって前記溶融金属を貯留する容器に設けられたオリフィスから前記溶融金属を不活性ガス流中に1個ずつ単分散粒子として噴射して球状化し、冷却用水中で冷却した後、球形単分散粒子を回収することを特徴とする単分散粒子の製造方法。

【請求項2】前記ダイアフラムの変位は、前記臨界変位より大の所定変位に制御されるよう構成した請求項1に記載の球形単分散粒子の製造方法。

【請求項3】溶融金属を貯留するための第1の容器と、この第1の容器に前記溶融金属を補給するための第2の容器と、この第2の容器の外周に設けられる加熱装置と、前記第1の容器と前記第2の容器を連通する補給管路と、前記第1の容器の底部に設けられ、溶融金属を1個ずつ単分散粒子として噴射するためのオリフィスと、このオリフィスの下方に単分散粒子を球形化するための不活性ガス流を生じさせるチャンバと、このチャンバに不活性ガスを導入する導入管と、前記チャンバの下方に設けられ、前記オリフィスから噴射された球形単分散粒子を冷却する冷却水を貯留し、前記球形単分散粒子を回収するための水槽と、

所定のパルス圧力を発生する圧電アクチュエータと、このパルス圧力を伝達する伝達ロッドと、伝達ロッドの先端に一体的に取り付けられ、前記第1の容器を液密に保つように前記第1の容器内の前記溶融金属と密着して前記溶融金属に前記パルス圧力を付加するためのダイアフラムとを有し、

前記圧電アクチュエータによる前記パルス圧力の印加によって前記ダイアフラムを前記溶融金属側に臨界変位以上変位させ、前記オリフィスから前記溶融金属を1個ずつ液滴として噴射し、この液滴を球形単分散粒子化するよう構成したことを特徴とする球形単分散粒子の製造装置。

【請求項4】前記ダイアフラムの変位は、前記臨界変位より大の所定変位に制御されるよう構成した請求項1に記載の球形単分散粒子の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、サイズの揃った微小球形粒子、すなわち球形単分散粒子あるいは球形単分散粉体を製造するための球形単分散粒子の製造方法および装置に関し、詳しくは、電子顕微鏡観察における標準サイズ粒子、半導体装置などの精密電子機器製造工程におけるマイクロソルダリングおよびHIP成形などによる焼

結合金製造のための合金粉などに用いられる球形単分散粒子製造方法および装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】サイズの揃った微小粒子、すなわち単分散粒子あるいは単分散粉体は、今日種々の科学技術の分野で需要が増大している。例えば粒サイズの揃った微小粒子としてよく知られているゾル・ゲル法によって作製されるラテックス粒子は、粒度分布の標準偏差が平均粒径の約10%であり、電子顕微鏡観察における標準サイズ粒子として用いられている。半導体工業ではICチップの小型化や接合のために30~40μmの粒度の揃った球形半田粉が要望されている。また、合金粉のHIP成形においても、材料に対して致命的な欠陥となる不均一空隙の形成を防ぐため、粒度の揃った球形粉が必要であるとされている。

【0003】サイズの揃った微小粒子を作るための方法としては数μm以下の酸化物微粒子に限れば、前述のゾル・ゲル法からあり、一方100μm以上の粒子が希望であれば、プラズマ回転電極法(PREP法)がある。ある程度の粒度幅を許容するならば、一般的なアトマイズ粉を篩などで機械的に級別する方法も実用的である。

【0004】しかし、従来の方法では粒サイズを幅広く制御すること、すなわち希望の粒サイズの単分散粒子を得ることは一般に困難である。ゾル・ゲル法ではすでに述べたように0.1~1.2μmの微粒子の作製に限定されるし、PREP法では電極の回転安定性から、粒径約100μmがその作製限界である。現状における単分散粒子の応用分野を拡大するためには、より自由に粒度制御の可能な作製プロセスの開発が望まれていた。

【0005】このため、本出願人は、パルス圧力を圧電アクチュエータで発生させ、圧電アクチュエータに密着する振動数によって溶融金属を噴射ノズルから噴射させて、単分散粒子の試作を行うパルス付加ノズル噴射法を考案した。この方法は、噴射ノズルの口径である0.4mmにほぼ等しい円相当径の噴射粒子を得ることができ、得られた単分散粒子の形状もサイズもそろっており、その粒度分布(粒径/平均粒径の頻度分布)も比較的狭く、単分散粒子を作製する代表的な方法として確率されているゾル・ゲル法による粉末にほぼ匹敵するものである。

【0006】しかしながら、この方法で得られる単分散粒子の粒子形状は、ほとんどが噴射方向に伸長した涙滴形であり、この方法では球形単分散粒子はほとんど得られないという問題があるし、あるいは球形単分散粒子が得られたとしても再現性がなく、安定的に得ることは極めて困難であるという問題もある。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記従来技術の問題点を解消し、個々の粒子の粒度をより幅広く人為的に制御することができ、安定して粒度のそろ

ったより真球に近い球形の単分散粒子を製造することができる球形単分散粒子製造方法および装置を提供するにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、本発明は、熔融金属から球形単分散粒子を製造するに際し、圧電アクチュエータにパルス圧力を発生させ、このパルス圧力を伝達ロッドを介してダイアフラムに伝達し、このダイアフラムに密着する前記熔融金属に伝達して、前記ダイアフラムの熔融金属側への臨界変位以上の変位によって前記熔融金属を貯留する容器に設けられたオリフィスから前記熔融金属を不活性ガス流中に1個ずつ単分散粒子として噴射して球状化し、冷却用水中で冷却した後、球形単分散粒子を回収することを特徴とする単分散粒子の製造方法を提供するものである。

【0009】また、本発明は、熔融金属を貯留するための第1の容器と、この第1の容器に前記熔融金属を補給するための第2の容器と、この第2の容器の外周に設けられる加熱装置と、前記第1の容器と前記第2の容器を連通する補給管路と、前記第1の容器の底部に設けられ、熔融金属を1個ずつ単分散粒子として噴射するためのオリフィスと、このオリフィスの下方に単分散粒子を球形化するための不活性ガス流を生じさせるチャンバと、このチャンバに不活性ガスを導入する導入管と、前記チャンバの下方に設けられ、前記オリフィスから噴射された球形単分散粒子を冷却する冷却水を貯留し、前記球形単分散粒子を回収するための水槽と、所定のパルス圧力を発生する圧電アクチュエータと、このパルス圧力を伝達する伝達ロッドと、伝達ロッドの先端に一体的に取り付けられ、前記第1の容器を液密に保つように前記第1の容器内の前記熔融金属と密着して前記熔融金属に前記パルス圧力を付加するためのダイアフラムとを有し、前記圧電アクチュエータによる前記パルス圧力の印加によって前記ダイアフラムを前記熔融金属側に臨界変位以上変位させ、前記オリフィスから前記熔融金属を1個ずつ液滴として噴射し、この液滴を球形単分散粒子化するよう構成したことを特徴とする球形単分散粒子の製造装置を提供するものである。

【0010】ここで、前記ダイアフラムの変位は、前記臨界変位より大の所定変位に制御されるよう構成したものが好ましい。また、前記第1の容器の底部は逆円錐状をなし、前記オリフィスはその頂点に設けられるのが好ましい。前記第1の容器の底部の中心には突起を有し、この突起に前記オリフィスが形成されるのが好ましく、また、このオリフィスの出口側は拡径しているのが好ましい。また、オリフィス（内面）は熔融金属との濡れ性がよい材料で構成されるのが好ましい。

【0011】

【実施態様】本発明に係る球形単分散粒子の製造方法および装置を添付の図面に示す好適実施例に基づいて詳細

に説明する。しかし、本発明は図示例に限定されるものではない。

【0012】図1は、本発明の球形単分散粒子の製造方法を実施する球形単分散粒子製造装置の一実施例の模式的断面図である。図2(a)、(b)および(c)は、それぞれ図1に示す装置10の要部の上面図、部分断面正面図および底面図であり、図3(a)および(b)は、それぞれ、図2(b)のA-A線およびB-B線矢視図である。

【0013】同図に示すように、本発明の単分散粒子製造装置10は、所定周波数の矩形波を発生させるファンクションジェネレータ12と、この矩形波を増幅するパワーアンプ14と、増幅された矩形波の印加によって前記所定周波数のパルス圧力を発生する圧電アクチュエータ16と、このアクチュエータ16に固定され、前記パルス圧力を伝達する伝達ロッド18と、この伝達ロッド18の先端に取り付けられ、熔融金属20に前記パルス圧力を付加するダイアフラム22と、前記熔融金属20を貯留する第1の容器を構成する内側底面が円錐形をなす溶湯室23を規定するオリフィスブロック24と、オリフィスブロック24の底部中心に設けられ、溶湯室23に連通するオリフィス26と、溶湯室23に熔融金属20を補給するための第2の容器を構成する補給用溶湯室27および溶湯室23と液溜め27とを連通する補給管路28を有する円筒状部材30と、円筒状部材30の外周に設けられる加熱装置32と、オリフィス26の下方に配設される不活性ガス雰囲気制御のためのチャンバ34と、単分散粒子を冷却する冷却水を貯え、単分散粒子を回収するための水槽36とを有する。

【0014】ここで、図2(a)および(b)に示すように圧電アクチュエータ16は、単分散粒子製造装置10の円筒状上部ブロック38内にその側面の4つのねじ穴39に螺入される4本の止めねじ（図示せず）で固定されるアクチュエータ押え40によって取り付けられる。また、圧電アクチュエータ16と伝達ロッド18との連結は、アクチュエータ16をアクチュエータ押え40と伝達ロッド18との間に挟み込み、アクチュエータ押え40と伝達ロッド18とをボルト41aとナット41bとで固定することによって行われる。

【0015】ところで、圧電アクチュエータ16としては、積層型圧電素子（例えば、（株）トーキン製NLA・5×5×18、最大変位量14.7μm、周波数特性1.7MHz）を好適に用いることができるが、一般に圧電素子は高温（例えば、前述の圧電素子では約370K）になると、圧電機能が損なわれるので、冷却を行う必要がある。このため、本発明装置10においては、図1、図2(b)および図3(a)に示すように水冷パイプ42を装置本体（上部ブロック38、アクチュエータ16など）に取り付け、アクチュエータ16を上記限

界温度以下に保持するよう構成される。

【0016】オリフィスブロック24は、図2(c)に示すように円筒状部材30に3本のボルト43によって液密に固定される。ダイアフラム22は、オリフィスブロック24と円筒状部材30の中央部分によって規定される溶湯室23の天井を覆っている。ここで、図2

(b)および図3(b)に示すように円筒状のダイアフラム22の外縁部分を円筒状部材30の内縁部分に載置し、その上からダイアフラム押え44を載置し、円筒状部材30とダイアフラム押え44とを4本のボルト45

によって固定することによりダイアフラム22が溶湯室23を液密に覆う天井となる。
【0017】伝達ロッド18の先端はダイアフラム22に密着しており、圧電アクチュエータ16のバルス圧力(バルス状の変位)が伝達ロッド18を介してダイアフラム22に伝達され、圧電アクチュエータ16の変位に応じて変位する。ダイアフラム22の変位は、溶湯室23内の熔融金属20にバルス圧力を付加する。熔融金属20にバルス圧力が付加される度にオリフィス26からその口径ゆに応じた単分散粒子が噴射されることにな

る。ここで、ダイアフラム22は、例えば0.1mm厚のステンレス(SUS)薄板などのように応答性のよい薄膜を用い、圧電アクチュエータ16と伝達ロッド18とを一体構造とすることにより圧電アクチュエータ16の動きを正確にダイアフラム22に伝達することができるので、ダイアフラム22は、付加されるバルスに応じて正確に振動することができる。ここで、上記0.1mm厚のステンレス板をダイアフラム22として用いた場合の駆動精度を1μmとすることができる。また、この

ような圧電アクチュエータ16を使用する構成により、ダイアフラムの正確な変位制御、高速駆動(高周波数バルスにも追従可能)および任意波形での制御が可能である。
【0018】一方、円筒状部材30の2つの液溜め27の上側には円筒状の蓋部材46が載置されている。また、その上側にはフラックスペーパーからなる断熱板48が載置され、その上側にある上部ブロック38と溶湯金属20を貯留する円筒状部材30などとの間を熱的に遮断している。ここで円筒状部材30、蓋部材46、断熱板48および上部ブロック38とは上部ブロック38

10

20

30

導入管50が取り付けられ、ダイアフラム22の振動に応じて液溜め27内の雰囲気調整するように構成される。すなわち、ダイアフラム22に付加されるバルス圧力波と良好な球形単分散粒子の安定な形成とのかねあいをとるため、不活性ガス導入管50から不活性ガスを出入して液溜め27内のガス圧を精密に制御することが必要である。

【0020】図2(b)、(c)および図3(b)に示すように円筒状部材30の外周面(側面)および底面の外縁部には加熱装置32を構成するバンドヒータが取り付けられ、図示しない電源に接続されている。また、溶融金属20の温度調節を行うために、円筒状部材30にはその中心部分にまで熱伝対52が埋め込まれている。ここで、加熱装置32として用いられるヒータは、特に制限的ではなく、所要の温度に加熱保持できればどのようなものでもよい。

【0021】チャンバ34には、不活性ガスを導入するための複数の導入管54が取り付けられ、オリフィス26から液滴状に噴射された溶融金属20が球状化を促進する不活性ガス雰囲気となるように調整される。すなわち、不活性ガス流によって球状化に最適な冷却速度になるように制御される。この不活性ガス雰囲気を保つための不活性ガスの流入量は、溶融金属20の冷却速度の制御が球状化に最適であれば、特に限定されるものではなく、溶融金属20の種類、温度、噴出速度、オリフィス26の口径や長さなどの種々のパラメータに応じて適宜選択すればよい。また、チャンバ34の長さ、即ち、オリフィス26から噴射された単分散粒子が不活性ガス雰囲気を非行する長さも、特に制限的ではなく、上記パラメータや不活性ガスの種類や流量等に応じて適宜選択すればよい。

【0022】本発明において製造される単分散粒子の材質は、特に制限的ではなく、用途に応じ、種々の金属を用いることができる。従って、溶融金属20の温度も用いられる金属の融点以上で完全に溶融し、必要なだけ流動できれば特に制限的ではない。

【0023】本発明においては、圧電アクチュエータ16によってダイアフラム22を溶融金属20側に所定変位量以上変位させることによって、オリフィス26から1回の変位によって1個の単分散粒子を噴射させて、ほぼオリフィス26の口径にほぼ等しい単分散粒子を得るものである。ここで、ダイアフラム22の変位量が小さいとオリフィス26から単分散粒子は噴射されないの

で、変位量の限界値、すなわち臨界変位より大きく変位させて単分散粒子を噴射させる必要がある。また、圧電アクチュエータ16のバルス圧力の周波数も、特に制限的ではなく、単分散粒子の材料等に応じて適宜選択すればよい。

50

【0024】本発明においては、オリフィス26を構成する材料として、単分散粒子(溶融金属)材料に応じて

最適な材質を選定することが可能であり、例えば、材質の選定によって濡れ性を改善することができる。また、オリフィス26の口径(ϕ)と長さ(L)との比を調整することにより直径と寸法に近い値の球形粒子を得ることができる。さらに、図4(a)、(b)および(c)に示すようなオリフィス26を単分散粒子材料に応じた最適化した形状のものをもちいることができる。図4(a)は通常のオリフィスであり図4(b)では、オリフィス部分に少し突起を設けて熔融金属の切れ性をよくしているし、図4(c)では、突起に形成されたオリフィスの出口を拡張して、さらに切れ性をよくしている。この他にも単分散粒子材料に応じた種々のオリフィス形状を採用することができる。ここで、本発明に用いられるオリフィスの口径は、特に制限的ではなく、必要な単分散粒子の径に応じて適宜選択すればよいが、例えば、1~1000 $\mu\text{m}\phi$ 、より好ましくは30~500 $\mu\text{m}\phi$ 、さらに好ましくは50~150 $\mu\text{m}\phi$ とするのがよい。

【0025】本発明の球形単分散粒子の製造装置は、基本的には以上のように構成されるが、以下にその作用とともに本発明の球形単分散粒子の製造方法について説明する。

【0026】まず、浴湯室23、補給管路28、液溜め27に十分な量の熔融金属20を入れ、加熱装置32によって一定温度に保持する。一方、圧電アクチュエータ16が加熱されないようにパイプ42には冷却水を流しておく。また、導入管50および54から不活性ガスを導入し、液溜め27のガス圧を精密に最適値に調整するとともに、チャンバ34内の不活性ガス流が最適な冷却速度となるように制御しておく。この他必要な準備を行なう。

【0027】次に、ファンクションジェネレータ12において所定周波数の矩形波を発生させ、パワーアンプ(電力増幅器)で増幅した後に圧電アクチュエータ16に印加し、所定周波数、所定振幅の振動を発生させ、一体構造の伝達ロッド18を介してダイアフラム22を同じ周波数のパルスで振動させ、ダイアフラム22と密着している熔融金属20にパルス圧力波を生じさせる。すなわち、アクチュエータ16が下方、熔融金属20側に所定の臨界変位以上変位すると、伝達ロッド18を介してダイアフラム22が前記臨界変位以上上下方に変位し、オリフィス26から熔融金属20を液滴状にして単分散粒子として噴射する。この単分散粒子の噴射はパルス圧力波の1周期に1個ずつ噴射する。この時、液溜め27にはダイアフラム22の振動に応じて補給管路28を通して熔融金属が出入するので、液溜め27内の不活性ガス圧をダイアフラム22の振動に合わせて精密に制御し、単分散粒子形成のバランスをとるのがよい。

【0028】こうして噴射された単分散粒子は、チャンバ34内の不活性ガス流によって冷却速度を最適に制御

され、チャンバ34内を下降しつつほぼ真球近くまで球状化し、球形単分散粒子となって水槽36内に突入し、回収される。こうして、ほぼオリフィス26の口径に近い直径を有するほぼ真球近くまで球状化した単分散粒子を得ることができる。こうして得られた単分散粒子の粒度分布は極めてばらつきの少ないものである。

【0029】

【実施例】圧電アクチュエータ16として積層型圧電素子(株)トーキン製NLA・5×5×18)、ファンクションジェネレータ12としてはFG-330(株)IWATU製)、パワーアンプ14としてはNF-4025(株)NF回路設計ブロック製)を用いた。アクチュエータ16として用いた積層型圧電素子の最大変位量は14.7 μm 、周波数特性は1.7MHzである。水冷パイプ42に冷却水を通し、この圧電素子が370K以上にならないように冷却した。また、用いたダイアフラム22の厚さは0.1mm、直径15mmのステンレス板を用いた。高温になる部材、オリフィスブロック24、ダイアフラム押え44、円筒状部材30、蓋部材46、伝達ロッド18、アクチュエータ押え40などはセラミック製とした。

【0030】単分散粒子の材料として、低融点金属のウットメタル(融点343K)を用い、シースヒータにより480Kに加熱保持して、チャンバ34内にはArガスを圧力0.1atm、流量10l/minで導入管54から導入した。オリフィス26の口径は約130 μm のものをを用いた。オリフィス26から噴射された粒子はオリフィス26より約50cm下方で回収し、SEMによる粒子形状観察および画像解析装置による粒度分布測定を行なった。また、粒子噴射の様子を高速度ビデオカメラ(10000コマ/s)によって撮影し、粒子形成機構のモデル計算を行なった。これらの結果を以下に示す。

【0031】なお、比較例1として、プラズマ回転電極法によって得られた粉末の粒度分布(平均粒径=271 μm 、標準偏差=14.6 μm)を求めた。さらに比較例2として、チャンバ34を設けておらず、Arガス雰囲気でない以外は実施例と同一の装置および熔融金属を用いてパルス圧力付加オリフィス噴射による単分散粒子の製造を行なった。この場合のオリフィスの口径は400 μm 、熔融温度は423K、周波数は50Hzであった。比較例2で得られた単分散粒子についてもSEMによる粒子形状観察および画像解析装置による粒度分布測定も行なった。

【0032】図5(a)および(b)は実施例によって得られた代表的な噴射粒子のSEM写真を示す。これらの写真から明らかなように、どちらの場合もほぼオリフィス径に相当する直径約150 μm の球形粒子が噴射されていることがわかる。粒子噴射が可能となる臨界変位(6.5 μm)の直上の変位量7.5 μm までのもので

は図5(a)に示すような粒度のそろった球形単分散粒子が得られる。変位量を $7.5\mu\text{m}$ より大にすると図5(b)に示されるようにほぼオリフィス径に相当する球形粒子とともに球形小粒子も同時に噴射されるようになり、そのため粒度分布がバイモーダルな分布となり、図6に示すように標準偏差が急激に増加する。ここで、図6の斜線部分は、臨界変位以下の非噴射領域を示す。従って、臨界変位の直上の変位量に設定して噴射すれば、粒度のそろった球形単分散粒子が得られることがわかる。これに対し、図7に示すように比較例2の単分散粒子は、球状化が不十分であることがわかる。

【0033】一方、実施例で得られた球形単分散粒子は平均粒径が $150\mu\text{m}$ 、標準偏差 $4.6\mu\text{m}$ であり、比較例2の単分散粒子の平均粒径が $406\mu\text{m}$ 、標準偏差が $39.1\mu\text{m}$ 、さらに比較例1のPREPにより得られる粉末の平均粒径が $271\mu\text{m}$ 、標準偏差が $14.6\mu\text{m}$ であったので、図8に示すように、本発明の実施例の単分散粒子の粒度分布は、平均粒径は同一ではないが、比較例1および比較例2の粒子の粒度分布の分布幅よりも狭く、粒度がよくそろったものであることがわかる。

【0034】また、高速度ビデオ撮影の結果より、粒子の噴射は溶湯の運動エネルギーと表面エネルギーとが釣り合う時に生じると考えることができ、図9に示す粒子形成機構モデルから得られる下記粒径計算式に従って、噴射粒子径についての制御が可能であることがわかった。溶湯の運動エネルギーと表面エネルギー（表面張力 $\times \Delta x$ ）のつり合いから

$$1/2 \cdot m v^2 = \pi D \gamma \Delta x$$

が得られ、粒子の質量は $m = 4/3 \cdot \pi r^3 \rho$ で与えられることから、噴射粒子径は下記式で与えられる。

$$d = 2r = (12 D \gamma / \rho)^{0.5} / v$$

ここで、Dはオリフィスの口径（直径）、rは単分散粒子の半径、vは溶融金属（溶湯）の速度、 γ は表面張力、 ρ は溶湯の密度である。すなわち、オリフィス直径Dと噴射速度vを制御することにより所望の粒子径を持つ球形単分散粒子を得ることができる。

【0035】

*

＊【発明の効果】以上、詳述したように、本発明法によれば、所望の粒子径を持ち、極めて粒度のそろった球形単分散粒子を容易に安定して確実に得ることができる。また、得られる単分散粒子の形状は極めて真球に近いものまで得ることができる。また、本発明法を実施する装置は、上記効果に加え、装置構成が簡単であるという効果も奏する。

【図面の簡単な説明】

図5(a)、(b)および図7は、「粒子構造」を示す図面代用写真である。

【図1】 本発明に係る球形単分散粒子の製造装置の一実施例の模式的断面図である。

【図2】 (a)、(b)および(c)は、それぞれ図1に示す装置の要部の上面図、部分断面正面図および底面図である。

【図3】 (a)および(b)は、それぞれ図2(b)のA-A線およびB-B線矢視図である。

【図4】 (a)、(b)および(c)は、いずれも本発明の球形単分散粒子の製造装置に用いられるオリフィスの形状を示す断面図である。

【図5】 (a)および(b)は、いずれも本発明の実施例で得られた単分散粒子のSEM写真である。

【図6】 本発明の実施例で得られた単分散粒子の標準偏差とダイアグラムの変位量との関係を示すグラフである。

【図7】 比較例2で得られた単分散粒子のSEM写真である。

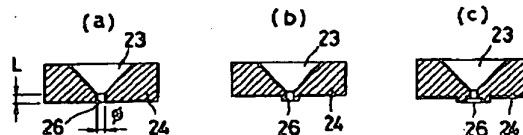
【図8】 本発明の実施例、比較例1および比較例2の粒度分布のグラフである。

【図9】 本発明の球形単分散粒子の製造方法において得られる単分散粒子形成機構モデルを示す模式図である。

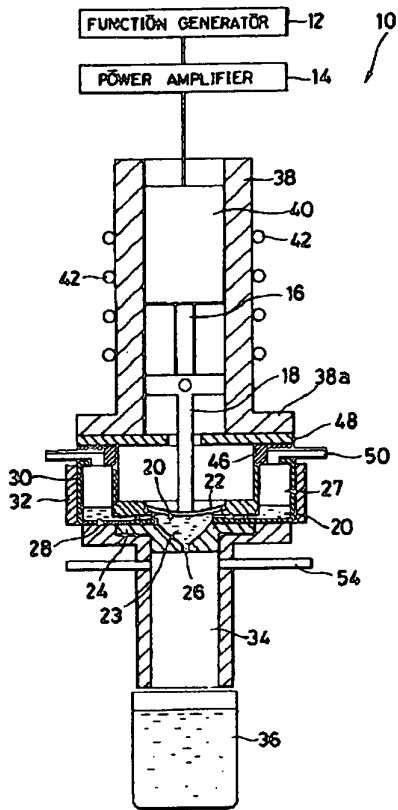
【符号の説明】

- 10 単分散粒子製造装置
- 16 圧電アクチュエータ
- 22 ダイアフラム
- 26 オリフィス

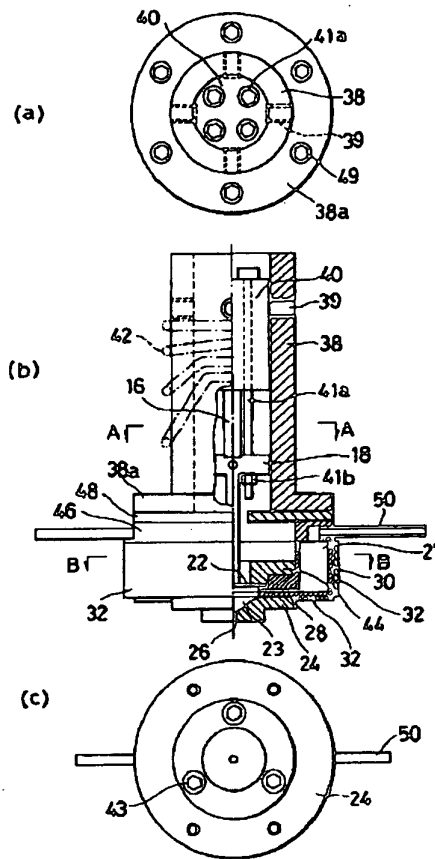
【図4】



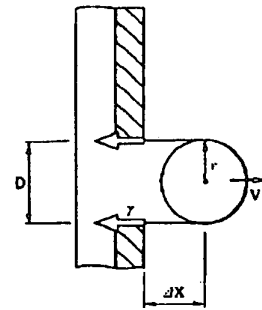
【図1】



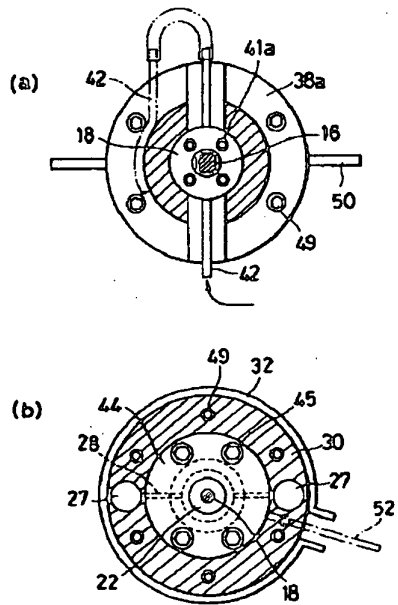
【図2】



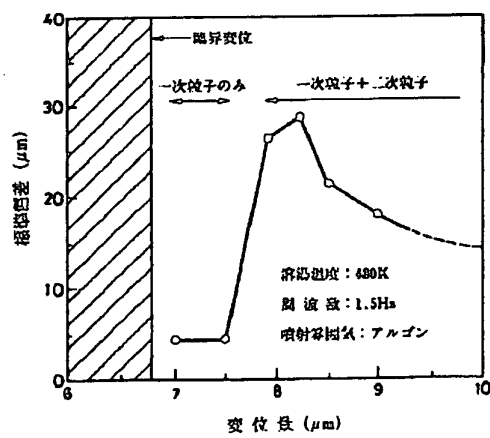
【図9】



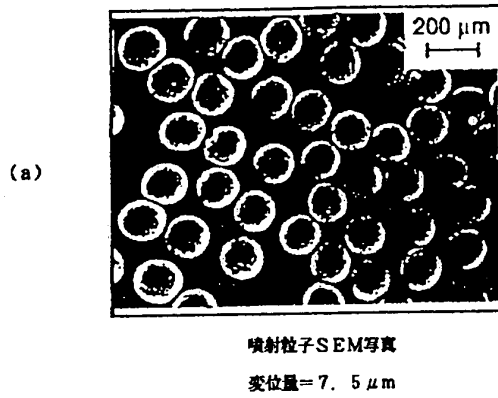
【図3】



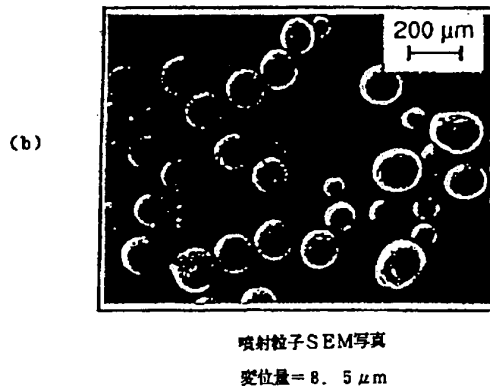
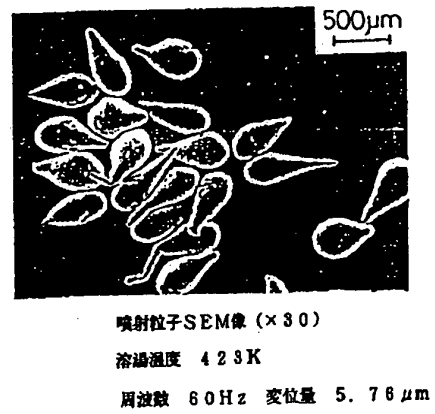
【図6】



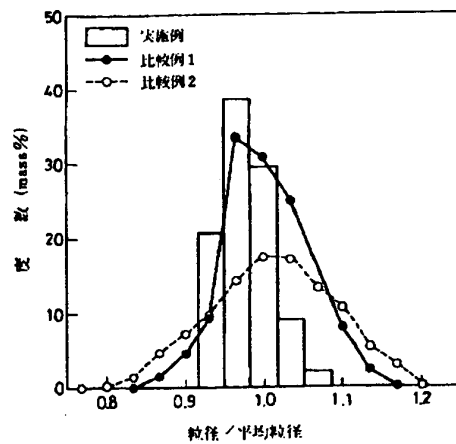
【図5】



【図7】



【図8】



フロントページの続き

(72)発明者 川 崎 亮
宮城県仙台市青葉区昭和町5-51-701

(72)発明者 黒 木 康 徳
宮城県仙台市青葉区下愛子上下17-2 か
いや ま荘201
(72)発明者 真 壁 英 一
宮城県仙台市宮城野区苦竹三丁目1番25号
株式会社真壁技研内

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載
 【部門区分】第3部門第4区分
 【発行日】平成11年(1999)10月12日

【公開番号】特開平6-184607
 【公開日】平成6年(1994)7月5日
 【年通号数】公開特許公報6-1847
 【出願番号】特願平3-317096
 【国際特許分類第6版】
 B22F 9/08
 【F I】
 B22F 9/08 C

【手続補正書】

【提出日】平成10年11月5日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項4

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項4】前記ダイヤフラムの変位は、前記臨界変位より大の所定変位に制御されるよう構成した請求項3に記載の球形単分散粒子の製造装置。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0002

【補正方法】変更

【補正内容】

【0002】

【従来の技術】サイズの揃った微小粒子、すなわち単分散粒子あるいは単分散粉体は、今日種々の科学技術の分野で需要が増大している。例えば粒子サイズの揃った微小粒子としてよく知られているゾル-ゲル法によって作製されるラテックス粒子は、粒度分布の標準偏差が平均粒径の約10%であり、電子顕微鏡観察における標準サイズ粒子として用いられている。半導体工業ではICチップの小型化や接合のために30~40 μ mの粒度の揃った球形半田粉が要望されている。また、合金粉のHIP成形においても、材料に対して致命的な欠陥となる不均一空隙の形成を防ぐため、粒度の揃った球形粉が必要であるとされている。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0003

【補正方法】変更

【補正内容】

【0003】サイズの揃った微小粒子を作るための方法としては数 μ m以下の酸化物微粒子に限れば前述のゾル-ゲル法があり、一方100 μ m以上の粒子が希望であれば、プラズマ回転電極法(PREP法)がある。ある

程度の粒度幅を許容するならば、一般的なアトマイズ粉を篩などで機械的に級別する方法も実用的である。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0005

【補正方法】変更

【補正内容】

【0005】このため、本出願人らは、パルス圧力を圧電アクチュエータで発生させ、圧電アクチュエータに密着する振動数によって溶融金属を噴射ノズルから噴射させて、単分散粒子の試作を行うパルス付加ノズル噴射法を考案した。この方法は、噴射ノズルの口径である400 μ mにはほぼ等しい円相当径の噴射粒子を得ることができ、得られた単分散粒子の形状もサイズも揃っており、その粒度分布(粒径/平均粒径の頻度分布)も比較的狭く、単分散粒子を作製する代表的な方法として確率されているゾル-ゲル法による粉末にはほぼ匹敵するものである。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正内容】

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記従来技術の問題点を解消し、個々の粒子の粒度をより幅広く人為的に制御することができ、安定して粒度の揃ったより真球に近い球形の単分散粒子を製造することができる球形単分散粒子製造方法および装置を提供するにある。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正内容】

【0017】伝達ロッド18の先端はダイヤフラム22

に密着しており、圧電アクチュエータ16のパルス圧力（パルス状の変位）が伝達ロッド18を介してダイアフラム22に伝達され、圧電アクチュエータ16の変位に応じて変位する。ダイアフラム22の変位は、溶湯室23内の熔融金属20にパルス圧力を付加する。熔融金属20にパルス圧力が付加される度にオリフィス26からその口径に応じた単分散粒子が噴射されることになる。ここで、ダイアフラム22は、例えば0.1mm厚のステンレス（SUS）薄板などのように応答性のよい薄膜を用い、圧電アクチュエータ16と伝達ロッド18とを一体構造とすることにより圧電アクチュエータ16の動きを正確にダイアフラム22に伝達することができるので、ダイアフラム22は、付加されるパルスに応じて正確に振動することができる。ここで、上記0.1mm厚のステンレス板をダイアフラム22として用いた場合の駆動精度を1μmとすることができる。また、このような圧電アクチュエータ16を使用する構成により、ダイアフラム22の正確な変位制御、高速駆動（高周波数パルスにも追従可能）および任意波形での制御が可能である。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正内容】

【0019】溶湯室23と液溜め27との間を連通する補給管路28は、ダイアフラム22の変位によって気泡等が発生するのを防止するために溶湯室23側から液溜め27側に向かって下降する傾斜を付けておくのが好ましい。また、液溜め27に貯留する熔融金属20の量は特に制限はないが、気泡等が溶湯室23に入らないように十分な量であるのが好ましい。また、蓋部材46には2つの液溜め27に連通するそれぞれ2本の不活性ガス導입管50が取り付けられ、ダイアフラム22の振動に応じて液溜め27内の雰囲気調整するように構成される。すなわち、ダイアフラム22に付加されるパルス圧力波と良好な球形単分散粒子の安定な形成との均衡をとるため、不活性ガス導입管50から不活性ガスを出入して液溜め27内のガス圧を精密に制御することが必要である。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

【補正方法】変更

【補正内容】

【0021】チャンバ34には、不活性ガスを導入するための複数の導입管54が取り付けられ、オリフィス26から液滴状に噴射された熔融金属20の球状化を促進する不活性ガス雰囲気となるように調整される。すなわち、不活性ガス流によって球状化に最適な冷却速度にな

るように制御される。この不活性ガス雰囲気を保つための不活性ガスの流入量は、熔融金属20の冷却速度の制御が球状化に最適であれば、特に限定されるものではなく、熔融金属20の種類、温度、噴出速度、オリフィス26の口径や長さなどの種々のパラメータに応じて適宜選択すればよい。また、チャンバ34の長さ、即ち、オリフィス26から噴射された単分散粒子が不活性ガス雰囲気を飛行する長さも、特に制限的ではなく、上記パラメータや不活性ガスの種類や流量等に応じて適宜選択すればよい。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0023

【補正方法】変更

【補正内容】

【0023】本発明においては、圧電アクチュエータ16によってダイアフラム22を熔融金属20側に所定変位量以上変位させることによって、オリフィス26から1回の変位によって1個の単分散粒子を噴射させて、ほぼオリフィス26の口径に等しい単分散粒子を得るものである。ここで、ダイアフラム22の変位量が小さいとオリフィス26から単分散粒子は噴射されないの、変位量の限界値、すなわち臨界変位より大きく変位させて単分散粒子を噴射させる必要がある。また、圧電アクチュエータ16のパルス圧力の周波数も、特に制限的ではなく、単分散粒子の材料等に応じて適宜選択すればよい。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】本発明においては、オリフィス26を構成する材料として、単分散粒子（熔融金属）材料に応じて最適な材質を選定することが可能であり、例えば、材質の選定によって濡れ性を改善することができる。また、オリフィス26の口径（φ）と長さ（L）との比を調整することにより直径と同寸法に近い値の球形粒子を得ることができる。さらに、図4（a）、（b）および（c）に示すようなオリフィス26を単分散粒子材料に応じて最適化した形状のものを用いることができる。図4（a）は通常のオリフィスであり図4（b）では、オリフィス部分に少し突起を設けて熔融金属20の切れ性をよくしているし、図4（c）では、突起に形成されたオリフィスの出口を拡張して、さらに切れ性をよくしている。この他にも単分散粒子材料に応じて種々のオリフィス形状を採用することができる。ここで、本発明に用いられるオリフィスの口径は、特に制限的ではなく、必要な単分散粒子の径に応じて適宜選択すればよいが、例えば、1～1000μmφ、より好ましくは30～50

0 μm ϕ 、さらに好ましくは50~150 μm ϕ とするのがよい。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正内容】

【0027】次に、ファンクションジェネレータ12において所定周波数の矩形波を発生させ、パワーアンプ（電力増幅器）14で増幅した後に圧電アクチュエータ16に印加し、所定周波数、所定振幅の振動を発生させ、一体構造の伝達ロッド18を介してダイアフラム22を同じ周波数のパルスで振動させ、ダイアフラム22と密着している溶融金属20にパルス圧力波を生じさせる。すなわち、圧電アクチュエータ16が下方、溶融金属20側に所定の臨界変位以上変位すると、伝達ロッド18を介してダイアフラム22が前記臨界変位以上下方に変位し、オリフィス26から溶融金属20を液滴状にして単分散粒子として噴射する。この単分散粒子の噴射はパルス圧力波の1周期に1個ずつ噴射する。この時、液溜め27にはダイアフラム22の振動に応じて補給管路28を通して溶融金属20が出入するので、液溜め27内の不活性ガス圧をダイアフラム22の振動に合わせて精密に制御し、単分散粒子形成のバランスをとるのがよい。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】単分散粒子の材料として、低融点金属のウットメタル（融点343K）を用い、シースヒータにより480Kに加熱保持して、チャンバ34内にはArガスを圧力0.1atm、流量10l/minで導入管54から導入した。オリフィス26の口径は約130 μm のものを用いた。オリフィス26から噴射された粒子はオリフィス26より約50cm下方で回収し、走査型電子顕微鏡（SEM）による粒子形状観察および画像解析装置による粒度分布測定を行った。また、粒子噴射の様子を高速度ビデオカメラ（10000コマ/s）によって撮影し、粒子形成機構のモデル計算を行った。これらの結果を以下に示す。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0031

【補正方法】変更

【補正内容】

【0031】なお、比較例1として、プラズマ回転電極法によって得られた粉末の粒度分布（平均粒径=271 μm 、標準偏差=14.6 μm ）を求めた。さらに比較例2として、チャンバ34を設けておらず、Arガス雰囲気でない以外は実施例と同一の装置および溶融金属を用いてパルス圧力付加オリフィス噴射による単分散粒子の製造を行った。この場合のオリフィスの口径は400 μm 、溶融温度は423K、周波数は50Hzであった。比較例2で得られた単分散粒子についてもSEMによる粒子形状観察および画像解析装置による粒度分布測定を行った。

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0033

【補正方法】変更

【補正内容】

【0033】一方、実施例で得られた球形単分散粒子は平均粒径が150 μm 、標準偏差4.6 μm であり、比較例2の単分散粒子の平均粒径が406 μm 、標準偏差が39.1 μm 、さらに比較例1のPREPにより得られる粉末の平均粒径が271 μm 、標準偏差が14.6 μm であったので、図8に示すように、本発明の実施例の単分散粒子の粒度分布は、平均粒径は同一ではないが、比較例1および比較例2の粒子の粒度分布の分布幅よりも狭く、粒度がよく揃ったものであることがわかる。

【手続補正15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】

【発明の効果】以上、詳述したように、本発明の方法によれば、所望の粒子径を持ち、極めて粒度の揃った球形単分散粒子を容易に安定して確実に得ることができる。また、得られる単分散粒子の形状は極めて真球に近いものまで得ることができる。また、本発明の方法を実施する装置は、上記効果に加え、装置構成が簡単であるという効果も奏する。